(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro





(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 28. Oktober 2004 (28.10.2004)

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 2004/093225 A3

- (51) Internationale Patentklassifikation7: H01M 8/10, 8/24
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE2004/000735
- (22) Internationales Anmeldedatum:

8. April 2004 (08.04.2004)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

103 17 780.9

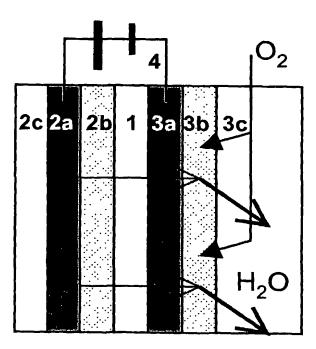
16. April 2003 (16.04.2003)

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH [DE/DE]; Wilhelm-Johnen-Strasse, 52425 Jülich (DE).

- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DOHLE, Hendrik [DE/DE]; Schoiffstrasse 32, 52224 Stolberg (DE). MÜLLER, Martin [DE/DE]; Endenicher Str. 53115 Bonn (DE). BRINGMANN, Jan [DE/DE]; Grade Eiche 42, 52445 Titz (DE). MERGEL, Jürgen [DE/DE]; Jan-von-Werth-Strasse 96, 52428 Jülich (DE). STOLTEN, Detlef [DE/DE]; Sperberweg 2, 52076 Aachen (DE).
- (74) Gemeinsamer Vertreter: FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH; Fachbereich Patente, 52425 Jülich (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

- (54) Title: CATHODE FOR A DIRECT METHANOL FUEL CELL AND METHOD FOR OPERATING THE SAME
- KATHODE FÜR EINE DIREKT-METHANOL-BRENNSTOFFZELLE SOWIE VERFAHREN ZUM (54) Bezeichnung: BETREIBEN DERSELBEN



- (57) Abstract: In low-temperature fuel cells according to prior art, the problem often arises that the diffusion layer of the cathode is filled by water which is permeated or produced on the cathode, such that oxygen can no longer be transported to the catalyst layer of the cathode in a frictionless manner. As a result, said fuel cells are regularly used with a high excess of oxygen in order to reduce the cited transport problems for the oxygen. The inventive fuel cell enables said problem to be solved in that the arrangement of the diffusion layer and the catalyst layer of the cathode is inverted. The diffusion layer, which is embodied in such a way as to also conduct ions, is directly adjacent to the electrolyte membrane. The catalyst layer oriented towards the free cathode space can advantageously directly react with the supplied oxygen without further transport problems. A further advantage lies in the fact that the water produced on the catalyst layer of the cathode and/or permeated by the electrolyte membrane and the diffusion layer can be easily withdrawn via the free cathode space.
- (57) Zusammenfassung: Bei den aus dem Stand der Technik bekannten Niedertemperatur-Brennstoffzellen tritt häufig das Problem auf, dass die Diffusionsschicht der Kathode durch permeiertes oder an der Kathode erzeugtes Wasser derart gefüllt ist, dass ein reibungsloser Sauerstofftransport bis an die Katalysatorschicht der Kathode nicht mehr gegeben ist. Als Folge daraus werden diese Brennstoffzellen regelmäßig mit

einen hohen Überschuss an Sauerstoff gefahren, um die vorgenannten Transporthemmungen für den Sauerstoff zu verringern. Die erfindungsgemäße Brennstoffzelle löst dieses Problem, indem sie die Diffusionsschicht und die Katalysatorschicht der Kathode in ihrer Anordnung vertauscht. Dabei grenzt die Diffusionsschicht, die nun auch Ionen leitend ausgeführt ist, direkt an die Elektrolytmembran an. Die auf den freien Kathodenraum ausgerichtete Katalysatorschicht kann so vorteilhaft direkt mit dem zugeführten Sauerstoff ohne weitere Transporthemmungen reagieren. Als weiterer Vorteil lässt sich das an der Katalysatorschicht der Kathode erzeugte und/oder durch die Elektrolyt-Membran und die Diffusionsschicht permeierte Wasser leicht über den freien Kathodenraum abführen.

1 1881 I BINGRID IN BIRKE NIKO BILIK BILIK BIRK BIRK IN BING KOMB HINB HIDIR NIKOR BIK BIRTIN BIRTIN HIND HIND

CN, CO, CR, CU, CZ, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT,

RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

#### Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen
- (88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 6. Januar 2005

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

nal Application No

PCT/DE2004/000735 A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 H01M8/10 H01M H01M8/24 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 HO1M Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data, PAJ, INSPEC C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Category ° Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to daim No. Α US 2003/006145 A1 (MOLTER TRENT M ET AL) 1-7 9 January 2003 (2003-01-09) page 2, paragraph 25 - page 34; figure 3 Α DE 100 48 182 A (GEN MOTORS CORP N D GES D 1-7 STAA) 17 May 2001 (2001-05-17) page 4, line 21 - page 5, line 67; figures 2,3 EP 1 096 586 A (JOHNSON MATTHEY PLC) Α 1-7 2 May 2001 (2001-05-02) claims 1-9 US 4 585 711 A (VAIDYANATHAN HARIHARAN) 1-7 29 April 1986 (1986-04-29) column 4, line 6 - column 5, line 15; figure 2 Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in annex. Special categories of cited documents: "T" later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance \*E\* earlier document but published on or after the International "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 12 October 2004 26/10/2004 Name and mailing address of the ISA Authorized officer European Patent Office, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fax: (+31-70) 340-3016 Wiedemann, E

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intermal Application No
PCT/DE2004/000735

	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
tegory °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	US 6 541 147 B1 (MCLEAN GERARD FRANCIS ET AL) 1 April 2003 (2003-04-01) column 9, line 3 - column 10, line 7; figure 1	1-7

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

formation on patent family members

Interestal nail Application No PCT/DE2004/000735

	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·					DE2004/ 000/ 33
	atent document d in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US	2003006145	A1	09-01-2003	US	2002000385 A1	03-01-2002
				US	2004011668 A1	22-01-2004
				ĂÜ	2907801 A	25-06-2001
				CA	2394499 A1	21-06-2001
				EP	1245056 A1	
				JP	2003517096 T	02-10-2002
				WO		20-05-2003
					0145192 A1	21-06-2001
DE	10048182	Α	17-05-2001	US	6350539 B1	26-02-2002
				CA	2316486 A1	25-04-2001
				DE	10048182 A1	17-05-2001
EP	1096586	Α	02-05-2001	EP	1096586 A2	02-05-2001
			· — <del>-</del>	ĈA	2136133 A1	24-05-1995
				DE	69427676 D1	16-08-2001
				DE	69427676 T2	16-05-2001
				EP	0654837 A1	24-05-1995
				ĴΡ	7240204 A	12-09-1995
				ÜS	5702839 A	
				US	5871860 A	30-12-1997
					56/160U A	16-02-1999 
US 	4585711 	A	29-04-1986	NONE		
US	6541147	B1	01-04-2003	AT	215738 T	 15-04-2002
				ÁÜ	4526199 A	24-01-2000
				AU	4526399 A	24-01-2000
				AU	4526699 A	24-01-2000
				ΑŬ	4635099 A	24-01-2000
				AU	4635199 A	24-01-2000
			i	CA	2336087 A1	13-01-2000
				CA	2336354 A1	
				CA	2336354 AI 2336359 AI	13-01-2000
						13-01-2000
				DE	69901187 D1	08-05-2002
				DE	69901187 T2	28-11-2002
				EP	1099263 A1	16-05-2001
				WO	0002269 A2	13-01-2000
		•		WO	0002270 A2	13-01-2000
				WO	0002273 A2	13-01-2000
				WO	0002274 A2	13-01-2000
				WO	0002275 A2	13-01-2000
				GB	2339058 A	12-01-2000
				GB	2339059 A	12-01-2000
				GB	2339060 A	12-01-2000
			•	GB	2339063 A	12-01-2000
				GB	2339064 A	12-01-2000

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

nales Aktenzelchen PCT/DE2004/000735

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 H01M8/10 H01M8/24

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

### B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7 H01M

Recherchlerte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchlerten Gebiete fallen

Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, INSPEC

C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
Kategorie <sup>o</sup>	Bezelchnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Telle	Betr. Anspruch Nr.
A	US 2003/006145 A1 (MOLTER TRENT M ET AL) 9. Januar 2003 (2003-01-09) Seite 2, Absatz 25 - Seite 34; Abbildung 3	1-7
A	DE 100 48 182 A (GEN MOTORS CORP N D GES D STAA) 17. Mai 2001 (2001-05-17) Seite 4, Zeile 21 - Seite 5, Zeile 67; Abbildungen 2,3	1-7
A	EP 1 096 586 A (JOHNSON MATTHEY PLC)  2. Mai 2001 (2001-05-02)  Ansprüche 1-9	1-7
A	US 4 585 711 A (VAIDYANATHAN HARIHARAN) 29. April 1986 (1986-04-29) Spalte 4, Zeile 6 - Spalte 5, Zeile 15; Abbildung 2	1-7
X Weite	re Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  X Siehe Anhang Patentfamilie	

Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen  AV Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist  E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen	"T' Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundellegenden Prinzips oder der ihr zugrundellegenden Transfe erroserbe ihr
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsbartum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichungsbartungen	"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer T\u00e4tigkeit beruhend betrachtet werden
soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)  "O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht  "P' Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeidedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist	<ul> <li>Y' Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer T\u00e4tigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Ver\u00f6fentlichung mit einer oder mehreren anderen Ver\u00f6fentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung f\u00fcr einen Fachmann nahellegend ist</li> <li>"&amp;' Ver\u00f6fentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</li> </ul>
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des Internationalen Recherchenberichts
12. Oktober 2004	26/10/2004
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk	Bevollmächtigter Bediensteter
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Wiedemann, E

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Interrenales Aktenzeichen
PCT/DE2004/000735

^/F-→ ·		/DE2004/000735
C.(Fortsetz Kategorie*	ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
areanie,	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Te	Betr. Anspruch Nr.
A	US 6 541 147 B1 (MCLEAN GERARD FRANCIS ET AL) 1. April 2003 (2003-04-01) Spalte 9, Zeile 3 - Spalte 10, Zeile 7; Abbildung 1	1-7

## INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung die zur selben Patentfamilie gehören

Intermales Aktenzeichen
PCT/DE2004/000735

lm l	Recharchenharich+	Т	Datum der	Ι —	<del></del>		004/000/35	
lm Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		t	Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung	
US	2003006145	A1	09-01-2003	US	2002000385	A1	03-01-2002	
				US	2004011668	A1	22-01-2004	
				AU	2907801		25-06-2001	
				CA	2394499		21-06-2001	
				EP	1245056		02-10-2002	
				JP	2003517096		20-05-2003	
				WO	0145192	A1 	21-06-2001	
DE	10048182	Α	17-05-2001	US	6350539	B1	26-02-2002	
				CA	2316486	A1	25-04-2001	
	·			DE	10048182	A1	17-05-2001	
EP	1096586	Α	02-05-2001	EP	1096586		02-05-2001	
				CA	2136133	A1	24-05-1995	
				DE	69427676		16-08-2001	
				DE	69427676		16-05-2002	
				EP	0654837	A1	24-05-1995	
				JP	7240204	Α	12-09-1995	
				US	5702839	Α	30-12-1997	
				US	5871860		16-02-1999	
US	4585711	Α	29-04-1986	KEIN	-			
US	6541147	B1	01-04-2003	AT	215738	 Т	15-04-2002	
				AU	4526199		24-01-2000	
				ΑU	4526399		24-01-2000	
				AU	4526699		24-01-2000	
				AU	4635099	A	24-01-2000	
				AU	4635199	A	24-01-2000	
				CA	2336087		13-01-2000	
				CA	2336354		13-01-2000	
				CA	2336359		13-01-2000	
				DE	69901187		08-05-2002	
				DE	69901187	T2	28-11-2002	
				EP	1099263	A1	16-05-2001	
				WO	0002269	A2	13-01-2000	
				WO	0002270		13-01-2000	
				WO	0002273		13-01-2000	
				WO	0002274		13-01-2000	
				WO	0002275	A2	13-01-2000	
				GB	2339058	Α	12-01-2000	
				GB	2339059		12-01-2000	
				GB	2339060		12-01-2000	
				GB	2339063		12-01-2000	
				GD.	<b>233900.5</b>	A	[/= ] =>	